

DOCKET NO.: 209357 US

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: YABUNOUCHI Nobuhiro et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP00/00229

INTERNATIONAL FILING DATE: January 19, 2000

FOR: CATALYST FOR OLEFIN POLYMERIZATION AND PROCESS FOR PRODUCING
OLEFIN POLYMER

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	11-022075	29 January 1999
Japan	11-146305	26 May 1999

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP00/00229. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Surinder Sachar

Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423



22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 1/97)



09/869331

本 国 特 許 庁

19.01.00

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

REC'D 10 MAR 2000

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1 9 9 9 年 5 月 2 6 日

出 願 番 号

Application Number:

平成 11 年特許願第 146305 号

出 願 人

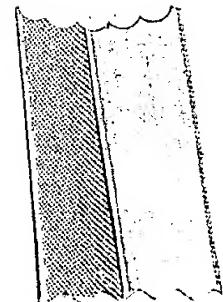
Applicant (s):

出光石油化学株式会社

4

**PRIORITY
DOCUMENT**

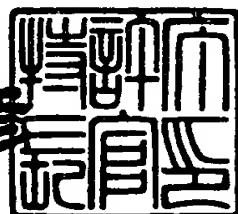
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



2 0 0 0 年 2 月 2 5 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Pat nt Office

近 藤 隆 康



出証番号 出証特 2000-3009633

【請求項の数】 12

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1

【氏名】 藤ノ内 伸浩

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1

【氏名】 鞠津 典夫

【特許出願人】

【識別番号】 000183657

【氏名又は名称】 出光石油化学株式会社

【代表者】 河野 映二郎

【代理人】

【識別番号】 100081765

【弁理士】

【氏名又は名称】 東平 正道

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 041472

【納付金額】

出物件の目録】

【物件名】

【物件名】 要約書

【包括委托状卷号】 0201726

特平11-146305

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 オレフィン類の重合用触媒及びオレフィン系重合体の製造方法

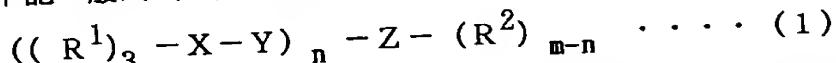
【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) 遷移金属化合物、

(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物

(C) 下記一般式(1)で表される化合物、



(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。Xは、14族の元素を示し、Yは、16族の元素を示し、Zは、2族～13族の金属元素を示す元素を示す。R²は、炭化水素基を示す。mは、金属元素Zの価数の整数を示し、nは、1～(m-1)の整数を示す。)

及び、必要に応じて用いられる(D)アルキル化剤からなるオレフィン類の重合用触媒。

【請求項2】 前記(C)において、Yが酸素であり、Zがアルミニウムである請求項1に記載のオレフィン類の重合用触媒。

【請求項3】 前記(C)の化合物が、一般式 $(R^1)_3 - C - OR^3$ で表される化合物と、一般式 $Z(R^2)_m$ で表される化合物との反応生成物である請求項1に記載のオレフィン類の重合用触媒。

(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれ

ぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。Z は、2族～13族の金属元素を示す。 R^2 は、炭化水素基を示す。 R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれ相互に同一であっても異なってもよい。m は、金属元素Zの価数の整数を示し、n は、1～(m-1) の整数を示す。)

【請求項4】

(A) 遷移金属化合物、

(B) 遷移金属化合物とイオン性の錯体を形成しうる化合物、

(C1) 一般式 $(R^1)_3 - C - O R^3$ で表される化合物

(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。 R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれ相互に同一であっても異なってもよい。)

(C2) 一般式 $Z (R^2)_m$ で表される化合物

(式中、Z は、2族～13族の金属元素を、m は、金属元素Zの価数の整数を示し、 R^2 は、炭化水素基を示す。)

、及び必要に応じて用いられる (D) アルキル化剤からなるオレフィン類の重合用触媒。

【請求項5】 前記3個の R^1 のうち、少なくとも1つが炭素数6～30の

芳香族炭化水素基である請求項1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

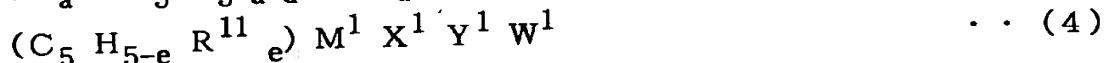
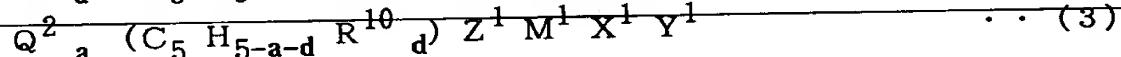
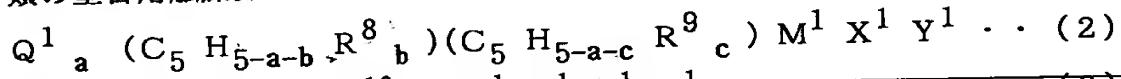
【請求項6】 前記3個のR¹のすべてが炭素数6～30の芳香族炭化水素基である請求項1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

【請求項7】 前記3個のR¹のすべてがフェニル基である請求項1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

【請求項8】 前記R²が炭素数2以上のアルキル基である請求項1～7のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

【請求項9】 前記乙がアルミニウムである請求項3～8のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

【請求項10】 前記(A)遷移金属化合物が、下記の一般式(2)～(6)のいずれかで表されるものである請求項1～9のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

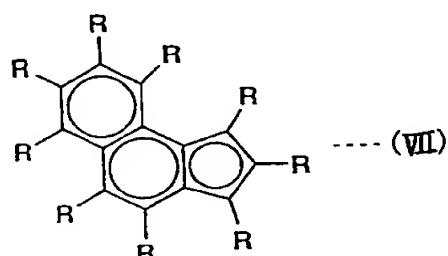
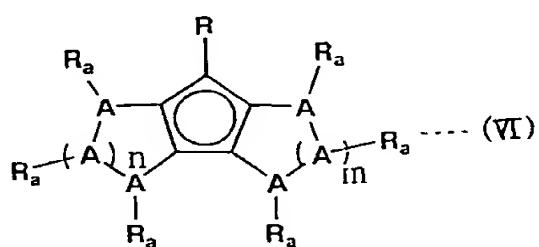
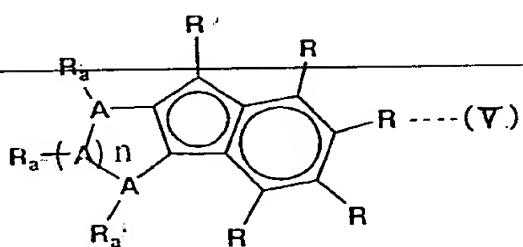
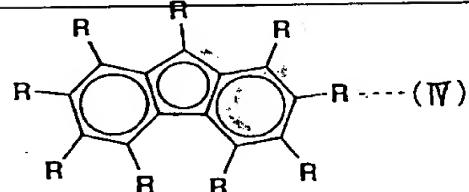
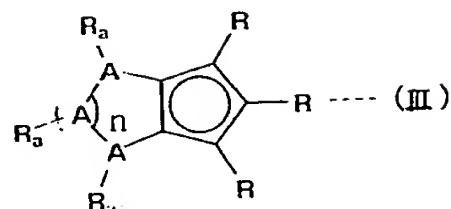
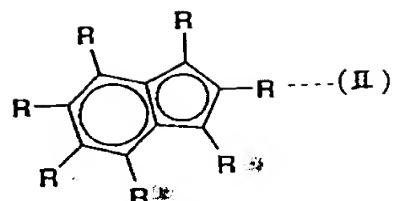
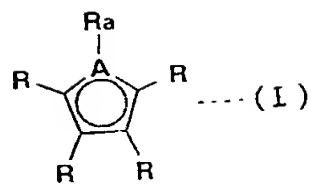


[式中、Q¹は二つの共役五員環配位子(C₅H_{5-a-b}R⁸_b)及び(C₅H_{5-a-c}R⁹_c)を架橋する結合性基を示し、Q²は共役五員環配位子(C₅H_{5-a-d}R¹⁰_d)とZ¹基を架橋する結合性基を示す。R⁸、R⁹、R¹⁰及びR¹¹は、それぞれ炭化水素基、ハロゲン原子、アルコキシ基、珪素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基又は硼素含有炭化水素基を示し、複数あるときは、互いに同一でも異なってもよく、互いに結合して環構造を形成してもよい。aは0、1又は2である。b、c及びdは、a=0のときはそれぞれ0～5の整数、a=1のときはそれぞれ0～4の整数、a=2のときはそれぞれ0～3の整数を示す。eは0～5の整数を示す。M¹は周期律表4～6族の遷移金属を示し、M²は周期律表8～10族の遷移金属を示す。また、L¹、L²はそれぞれ配位結合性の配位子を表わし、X¹、Y¹、Z¹、W¹、U¹はそれぞれ共有

結合性又はイオン結合性の配位子を表している。なお、 L^1 、 L^2 、 X^1 、 Y^1 、 W^1 および U^1 は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。】

【請求項11】 請求項10における一般式(4)の($C_5H_{5-e}R^{11}_e$)基が、下記一般式(I)～(VII)で表されるいずれかである遷移金属化合物(A)を用いる請求項10に記載のオレフィン類の重合用触媒。

【化1】



[式中, Aは13、14、15又は16族の元素を示し、Aは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。Rは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～3

0のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、カルボキシル基又は炭素数3～30のアルキルシリル基、アルキルシリルアルキル基を示し、Rは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよく、また、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。aは0、1又は2を示し、n及びmは、1以上の整数を示す。】

【請求項12】 請求項1～11のいずれかに記載の重合用触媒を用いてオレフィンを重合することを特徴とするオレフィン系重合体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、オレフィン類の重合用触媒及びオレフィン系重合体の製造方法に関し、詳しくは、特定の化合物をその一成分とするオレフィン類の重合用触媒及び該触媒を用いた、安価な、しかも効率のよいオレフィン系重合体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、 π 配位子を有し、該 π 配位子と中心金属元素とが任意の基を介して結合してなる遷移金属化合物を触媒成分とするオレフィン系重合体製造用触媒、いわゆるメタロセン触媒が開発され、オレフィン系重合体の製造に供されている。

しかしながら、このような触媒を用いて十分な活性を得るために、アルミニキサン等の多量の助触媒を必要とすることから、全触媒コストとしては高価なものになり、また、生成ポリマー中に助触媒に起因する触媒残渣が存在し、ポリマーの着色等の原因にもなるという問題があった。

【0003】

かかる状況に鑑み、助触媒の使用量を減らすべく、粘土や粘土鉱物等を代わりに用いる技術等が提案されている（特開平05-301917号公報、特開平06-136047号公報、特開平09-164510号、特開平01-009206号公報等）。

しかし、これらにおいても、十分な高活性のものが得られていないのが現状である。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、オレフィン系重合体を効率よく、安価に製造しうるオレフィン類の重合用触媒及びオレフィン系重合体の製造方法を提供することを目的とするものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記目的を達成するために銳意研究を重ねた結果、特定の化合物をその一成分とする重合用触媒を用いることにより重合活性が向上し、遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物等の助触媒の使用量を低減することができることを発見し、本発明を完成させるに至ったものである。

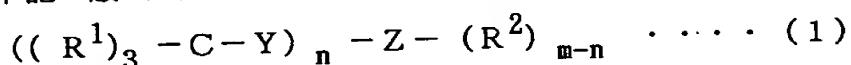
【0006】

すなわち、本発明は、以下のオレフィン類の重合用触媒及びオレフィン系重合体の製造方法を提供するものである。

1. (A) 遷移金属化合物、

(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物、

(C) 下記一般式 (1) で表される化合物、



(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 30 の脂肪族炭化水素基、炭素数 6 ~ 30 の芳香族炭化水素基、炭素数 1 ~ 30 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 30 のアリーロキシ基、炭素数 1 ~ 30 のチオアルコキシ基、炭素数 6 ~ 30 のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。X は、14 族の元素を示し、Y は、16 族の元素を示し、Z は、2 族 ~ 13 族の金属元素を示す。 R^2 は、炭化水素基を示す。m は、金属元素 Z の価数の整数を示し、n は、1 ~ (m - 1) の整数を示す。)

及び、必要に応じて用いられる (D) アルキル化剤からなるオレフィン類の重合用触媒。

2. 前記 (C) において、Yが酸素であり、Zがアルミニウムである上記1に記載のオレフィン類の重合用触媒。

3. 前記 (C) の化合物が、一般式 $(R^1)_3 - C - OR^3$ で表される化合物と、一般式 $Z (R^2)_m$ で表される化合物との反応生成物である上記1に記載のオレフィン類の重合用触媒。

(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。Zは、2族～13族の金属元素を示す。 R^2 は、炭化水素基を示す。 R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。 m は、金属元素Zの価数の整数を示し、 n は、1～(m-1)の整数を示す。)

4. (A) 遷移金属化合物、

(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物、

(C1) 一般式 $(R^1)_3 - C - OR^3$ で表される化合物

(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。 R^3 は、水素原

子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基又はカルボキシル基を示し、それぞれ相互に同一であつても異なつてもよい。)

(C2) 一般式 $Z (R^2)_m$ で表される化合物

(式中、Zは、2族～13族の金属元素を、mは、金属元素Zの価数の整数を示し、 R^2 は、炭化水素基を示す。)

、及び必要に応じて用いられる (D) アルキル化剤からなるオレフィン類の重合用触媒。

5. 前記3個の R^1 のうち、少なくとも1つが炭素数6～30の芳香族炭化水素基である上記1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

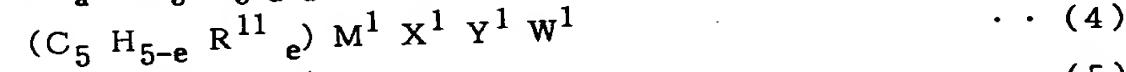
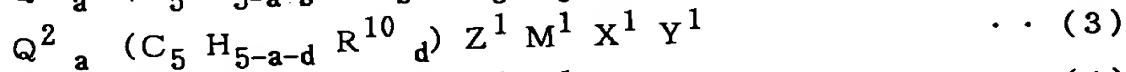
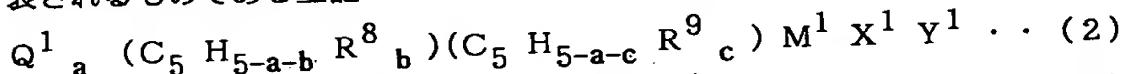
6. 前記3個の R^1 のすべてが炭素数6～30の芳香族炭化水素基である上記1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

7. 前記3個の R^1 のすべてがフェニル基である上記1～4のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

8. 前記 R^2 が炭素数2以上のアルキル基である上記1～7のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

9. 前記Zがアルミニウムである上記3～8のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。

10. 前記(A)遷移金属化合物が、下記の一般式(2)～(6)のいずれかで表されるものである上記1～9のいずれかに記載のオレフィン類の重合用触媒。



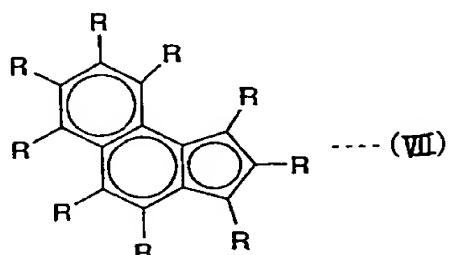
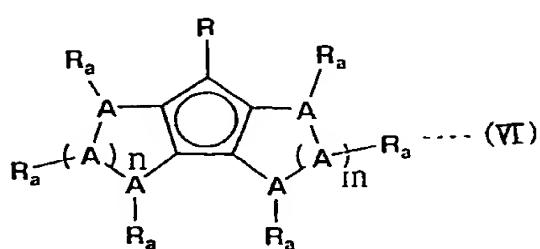
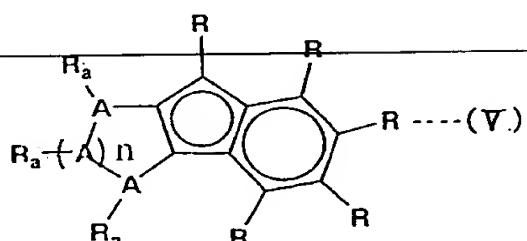
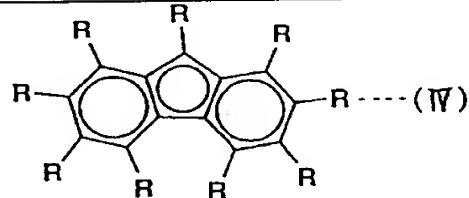
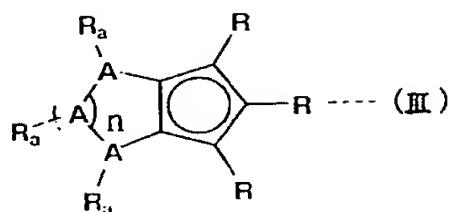
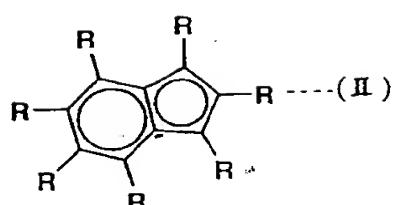
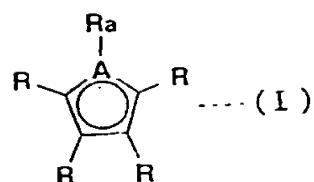
[式中、 Q^1 は二つの共役五員環配位子 $(C_5 H_{5-a-b} R^8_b)$ 及び $(C_5 H_{5-a-c} R^9_c)$ を架橋する結合性基を示し、 Q^2 は共役五員環配位子 $(C_5 H_{5-a-d} R^{10}_d)$ を示す。]

d R^{10} d) と Z^1 基を架橋する結合性基を示す。 R^8 , R^9 , R^{10} 及び R^{11} は、 それぞれ炭化水素基、 ハロゲン原子、 アルコキシ基、 硅素含有炭化水素基、 リン含有炭化水素基、 窒素含有炭化水素基又は硼素含有炭化水素基を示し、 複数あるときは、 互いに同一も異なってもよく、 互いに結合して環構造を形成してもよい。 a は 0, 1 又は 2 である。 b , c 及び d は、 $a = 0$ のときはそれぞれ 0~5 の整数、 $a = 1$ のときはそれぞれ 0~4 の整数、 $a = 2$ のときはそれぞれ 0~3 の整数を示す。 e は 0~5 の整数を示す。 M^1 は周期律表 4~6 族の遷移金属を示し、 M^2 は周期律表 8~10 族の遷移金属を示す。 また、 L^1 , L^2 はそれぞれ配位結合性の配位子を表わし、 X^1 , Y^1 , Z^1 , W^1 , U^1 はそれぞれ共有結合性又はイオン結合性の配位子を表している。 なお、 L^1 , L^2 , X^1 , Y^1 , W^1 および U^1 は、 それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。]

11. 上記 10 における一般式 (4) の $(C_5 H_{5-e} R^{11})_e$ 基が、 下記一般式 (I) ~ (VII) で表されるいずれかである遷移金属化合物 (A) を用いる上記 10 に記載のオレフィン類の重合用触媒。

【0007】

【化2】



【0008】

[式中, Aは13、14、15又は16族の元素を示し、Aは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。Rは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1

～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、カルボキシル基又は炭素数3～30のアルキルシリル基、アルキルシリルアルキル基を示し、Rは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよく、また、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。aは0、1又は2を示し、n及びmは、1以上の整数を示す。】

13. 上記1～11のいずれかに記載の重合用触媒を用いてオレフィンを重合することを特徴とするオレフィン系重合体の製造方法。

【0009】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明の実施の形態について詳しく説明する。

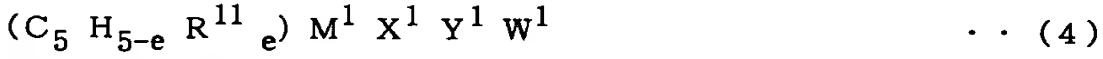
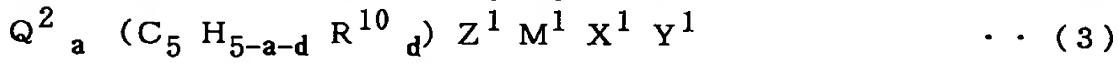
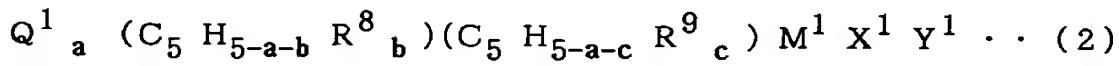
I. オレフィン類の重合用触媒

1. オレフィン類の重合用触媒の各成分

本発明のオレフィン類の重合用触媒は、(A) 遷移金属化合物、(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物、及び(C) 後述する一般式(1)で表される化合物、及び必要に応じて用いられる(D) アルキル化剤からなるものである。以下に、各成分について説明する。

(1) (A) 遷移金属化合物

本発明において用いられる(A) 遷移金属化合物としては、各種のものが使用可能であるが、周期律表4～6族遷金属化合物または8～10族遷金属化合物が好ましく用いられる。周期律表4～6族遷金属化合物としては、下記の一般式(2)～(5)で表されるものを好ましいものとして挙げることができ、周期律表8～10族の遷金属化合物としては、下記の一般式(5)で表されるものを好ましいものとして挙げることができる。



$L^1 L^2 M^2 X^1 Y^1$

.. (6)

[式中、 Q^1 は二つの共役五員環配位子 ($C_5 H_{5-a-b} R^8_b$) 及び ($C_5 H_{5-a-c} R^9_c$) を架橋する結合性基を示し、 Q^2 は共役五員環配位子 ($C_5 H_{5-a-d} R^{10}_d$) と Z^1 基を架橋する結合性基を示す。 R^8 , R^9 , R^{10} 及び R^{11} は、それぞれ炭化水素基、ハロゲン原子、アルコキシ基、珪素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基又は硼素含有炭化水素基を示し、複数あるときは、互いに同一でも異なってもよく、互いに結合して環構造を形成してもよい。a は 0, 1 又は 2 である。b, c 及び d は、a = 0 のときはそれぞれ 0 ~ 5 の整数、a = 1 のときはそれぞれ 0 ~ 4 の整数、a = 2 のときはそれぞれ 0 ~ 3 の整数を示す。e は 0 ~ 5 の整数を示す。 M^1 は周期律表 4 ~ 6 族の遷移金属を示し、 M^2 は周期律表 8 ~ 10 族の遷移金属を示す。また、 L^1 , L^2 はそれぞれ配位結合性の配位子を表わし、 X^1 , Y^1 , Z^1 , W^1 , U^1 はそれぞれ共有結合性又はイオン結合性の配位子を表している。なお、 L^1 , L^2 , X^1 , Y^1 , W^1 および U^1 は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。]

上記一般式 (2), (3) における Q^1 及び Q^2 の具体例としては、(1) メチレン基、エチレン基、イソプロピレン基、メチルフェニルメチレン基、ジフェニルメチレン基、シクロヘキシレン基などの炭素数 1 ~ 4 のアルキレン基、シクロアルキレン基又はその側鎖低級アルキル若しくはフェニル置換体、(2) シリレン基、ジメチルシリレン基、メチルフェニルシリレン基、ジフェニルシリレン基、ジシリレン基、テトラメチルジシリレン基などのシリレン基、オリゴシリレン基又はその側鎖低級アルキル若しくはフェニル置換体、(3) ゲルマニウム、リン、窒素、硼素又はアルミニウムを含む炭化水素基【低級アルキル基、フェニル基、ヒドロカルビルオキシ基(好ましくは低級アルコキシ基)など】、具体的には (CH_3)₂Ge 基, (C_6H_5)₂Ge 基, (CH_3)P 基, (C_6H_5)P 基, (C_4H_9)N 基, (C_6H_5)N 基, (CH_3)B 基, (C_4H_9)B 基, (C_6H_5)B 基, (C_6H_5)Al 基, (CH_3O)Al 基などが挙げられる。これらの中で、アルキレン基及びシリレン基が好ましい。

【0010】

また、($C_5 H_{5-a-b} R^8_b$), ($C_5 H_{5-a-c} R^9_c$) 及び ($C_5 H_{5-a-d}$

R^{10} _d) は共役五員環配位子であり、 R^8 、 R^9 及び R^{10} は、それぞれ炭化水素基、ハロゲン原子、アルコキシ基、珪素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基又は硼素含有炭化水素基を示し、aは0、1又は2である。b、c及びdは、a=0のときはそれぞれ0~5の整数、a=1のときはそれぞれ0~4の整数、a=2のときはそれぞれ0~3の整数を示す。ここで、炭化水素基としては、炭素数1~20のものが好ましく、特に炭素数1~12のものが好ましい。この炭化水素基は一価の基として、共役五員環基であるシクロペンタジエニル基と結合してもよく、またこれが複数個存在する場合には、その2個が互いに結合してシクロペンタジエニル基の一部と共に環構造を形成してもよい。すなわち、該共役五員環配位子の代表例は、置換又は非置換のシクロペンタジエニル基、インデニル基及びフルオレニル基である。ハロゲン原子としては、塩素、臭素、ヨウ素及びフッ素原子が挙げられ、アルコキシ基としては、炭素数1~12のものが好ましく挙げられる。珪素含有炭化水素基としては、例えば-Si(R¹²)(R¹³)(R¹⁴) (R¹²、R¹³及びR¹⁴は炭素数1~24の炭化水素基)などが挙げられ、リン含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基及び硼素含有炭化水素基としては、それぞれP-(R¹⁵)(R¹⁶)、-N(R¹⁵)(R¹⁶)及び-B(R¹⁵)(R¹⁶) (R¹⁵及びR¹⁶は炭素数1~18の炭化水素基)などが挙げられる。 R^8 、 R^9 及び R^{10} がそれぞれ複数ある場合には、複数の R^8 、複数の R^9 及び複数の R^{10} は、それぞれにおいて同一であっても異なっていてよい。また、一般式(2)において、共役五員環配位子($C_5H_{5-a-b}R^8$ _b)及び($C_5H_{5-a-c}R^9$ _c)は同一であっても異なっていてよい。

【0011】

一方、 M^1 は周期律表4~6族の遷移金属元素を示し、具体例としてはチタニウム、ジルコニウム、ハフニウム、ニオブ、モリブデン、タンゲステンなどを挙げることができるが、これらの中でチタニウム、ジルコニウム及びハフニウムが好ましく、特にジルコニウムが好適である。 Z^1 は共有結合性の配位子であり、具体的には酸素(-O-)、硫黄(-S-)、炭素数1~20、好ましくは1~10のアルコキシ基、炭素数1~20、好ましくは1~12のチオアルコキシ基、炭素数1~40、好ましくは1~18の窒素含有炭化水素基、炭素数1~40

、好ましくは1～18のリン含有炭化水素基を示す。 X^1 及び Y^1 は、それぞれ共有結合性の配位子であり、具体的には水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～20、好ましくは1～10の炭化水素基、炭素数1～20、好ましくは1～10のアルコキシ基、アミノ基、炭素数1～20、好ましくは1～12のリン含有炭化水素基（例えば、ジフェニルホスフィン基など）又は炭素数1～20、好ましくは1～12の珪素含有炭化水素基（例えば、トリメチルシリル基など）、炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基あるいはハロゲン含有硼素化合物（例えば $B(C_6H_5)_4$ 、 BF_4 ）を示す。これらの中でハロゲン原子及び炭化基が好ましい。この X^1 及び Y^1 はたがいに同一であっても異なっていてもよい。なお、 X^1 及び Y^1 は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。

【0012】

また、上記一般式(4)において、 M^1 は上記と同様に周期律表4～6族の遷移金属であり、また、 X^1 及び Y^1 は上記と同じである。また、 W^1 は X^1 及び Y^1 と同じである。すなわち、 W^1 はそれぞれ共有結合性の配位子であり、具体的には水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～20、好ましくは1～10の炭化水素基、炭素数1～20、好ましくは1～10のアルコキシ基、アミノ基、炭素数1～20、好ましくは1～12のリン含有炭化水素基（例えば、ジフェニルホスフィン基など）又は炭素数1～20、好ましくは1～12の珪素含有炭化水素基（例えば、トリメチルシリル基など）、炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基あるいはハロゲン含有硼素化合物（例えば $B(C_6H_5)_4$ 、 BF_4 ）を示す。これらの中でハロゲン原子及び炭化基が好ましい。 X^1 、 Y^1 及び W^1 はたがいに同一であっても異なっていてもよい。なお、 X^1 、 Y^1 及び W^1 は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。

【0013】

また、上記一般式(5)において、 M^1 は上記と同様に周期律表4～6族の遷移金属であり、また、 X^1 、 Y^1 及び W^1 は上記と同じである。また、 U^1 は X^1 、 Y^1 及び W^1 と同じである。すなわち、 U^1 はそれぞれ共有結合性の配位子であり、具体的には水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～20、好ましくは1～10の炭化水素基、炭素数1～20、好ましくは1～10のアルコキシ基、アミ

ノ基、炭素数1～20、好ましくは1～12のリン含有炭化水素基（例えば、ジフェニルホスフィン基など）又は炭素数1～20、好ましくは1～12の珪素含有炭化水素基（例えば、トリメチルシリル基など）、炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基あるいはハロゲン含有硼素化合物（例えばB (C₆H₅)₄, BF₄⁻）を示す。これらの中でハロゲン原子及び炭化基が好ましい。X¹、Y¹、W¹及びU¹はたがいに同一であっても異なっていてもよい。なお、X¹、Y¹、W¹及びU¹は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。

【0014】

(I) 前記一般式(2)及び(3)で表される遷移金属化合物の具体例として、以下の化合物を挙げることができる。なお、以下の具体例におけるチタニウムの部分についてジルコニウムと置き換えたものについても同様に例示することができる。

①ビス(シクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(メチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(ジメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(トリメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(テトラメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(ペンタメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド、ビス(n-ブチルシクロペンタジエニルチタニウムジクロリド、ビス(インデニル)チタニウムジクロリド、ビス(フルオレニル)チタニウムジクロリド、ビス(シクロペンタジエニル)チタニウムクロロヒドリド、ビス(シクロペンタジエニル)メチルチタニウムクロリド、ビス(シクロペンタジエニル)エチルチタニウムクロリド、ビス(シクロペンタジエニル)ジメチルチタニウム、ビス(シクロペンタジエニル)ジフェニルチタニウム、ビス(シクロペンタジエニル)ジヒドロチタニウム、(シクロペンタジエニル)(インデニル)チタニウムジクロリド、(シクロペンタジエニル)(フルオレニル)チタニウムジクロリドなどの架橋する結合基を有さず共役五員環配位子を2個有する遷移金属化合物、

②メチレンビス(インデニル)チタニウムジクロリド、エチレンビス(インデ

ニル) チタニウムジクロリド, メチレンビス(インデニル) チタニウムクロロヒドリド, エチレンビス(インデニル) メチルチタニウムクロリド, エチレンビス(インデニル) メトキシクロロチタニウム, エチレンビス(インデニル) チタニウムジエトキシド, エチレンビス(インデニル) ジメチルチタニウム, エチレンビス(4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2-メチルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2-メチル-4-ジメチルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2, 4-トリメチルシリルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2, 4-ジメチル-5, 6, 7-トリヒドロインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2-メチル-4, 5-ベンゾインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2, 4, 7-トリメチルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2-メチル-4-ナフチルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレンビス(2-メチル-4-フェニルインデニル) チタニウムジクロリド, エチレン(2, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) (3', 5'-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, エチレン(2-メチル-4-t-ブチルシクロペンタジエニル) (3' - t-ブチル-5' -メチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, エチレン(2, 3, 5-トリメチルシクペンタエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデンビス(2-メチルインデニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリド, イソプロピリデンビス(インデニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデンビス(2, 4-ジメチルインデニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(2, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) (3' 5' -ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(2-メチル-4-t-ブチルシクロペンタジエニル) (3' - t-ブチル-5' -メチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, メチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, メチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムクロロヒドリド, メチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジメチルチタニウム, メチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-

ージメチルシクロペンタジエニル) ジフェニルチタニウム, メチレン(シクロペンタジエニル) (トリメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, メチレン(シクロペンタジエニル) (テトラメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(シクロペンタジエニル) (2, 3, 4, 5-テトラメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(シクロペンタジエニル) (3-メチルインデニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(シクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(2-メチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (3, 4-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, イソプロピリデン(2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, エチレン(シクロペンタジエニル) (3, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, エチレン(シクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, エチレン(2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, エチレン(2, 5-ジエチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, ジフェニルメチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジエチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, ジフェニルメチレン(シクロペンタジエニル) (3, 4-ジエチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリド, シクロヘキシリデン(シクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, シクロヘキシリデン(2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (3', 4'-ジメチルシクロペンタジエニル) チタニウムジクロリドなどのアルキレン基で架橋した共役五員環配位子を2個有する遷移金属化合物

③ジメチルシリレンビス(インデニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレンビス(4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレンビス(2-メチルインデニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレンビス(2, 4-ジメチルインデニル) チタニウムジクロリド, ジメチ

ルシリレンビス(2,4-ジメチルシクロペンタジエニル)(3',5'-ジメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレンビス(2-メチル-4,5-ベンゾインデニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレンビス(2,4,7-トリメチルインデニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレンビス(2-メチル-4-ナフチルインデニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレンビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)チタニウムジクロリド,フェニルメチルシリレンビス(インデニル)チタニウムジクロリド,フェニルメチルシリレンビス(4,5,6,7-テトラヒドロインデニル)チタニウムジクロリド,フェニルメチルシリレン(2,4-ジメチルインデニル)チタニウムジクロリド,フェニルメチルシリレン(2,3,5-トリメチルシクロペンタジエニル)(2',4',5'-トリメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,フェニルメチルシリレンビス(テトラメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジフェニルシリレンビス(2,4-ジメチルインデニル)チタニウムジクロリド,ジフェニルシリレンビス(インデニル)チタニウムジクロリド,ジフェニルシリレンビス(2-メチルインデニル)チタニウムジクロリド,テトラメチルジシリレンビス(インデニル)チタニウムジクロリド,テトラメチルジシリレンビス(シクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,テトラメチルジシリレン(3-メチルシクロペンタジエニル)(インデニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(3,4-ジメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(トリメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(テトラメチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(トリエチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(テトラエチルシクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド,ジメチルシリレン(シクロペンタジエニル)(フル

オレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (シクロペンタジエニル) (2, 7-ジ-*t*-ブチルフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (シクロペンタジエニル) (オクタヒドロフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2-メチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2-エチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2, 5-ジエチルシクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, ジエチルシリレン (2-メチルシクロペンタジエニル) (2', 7'-ジ-*t*-ブチルフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2, 5-ジメチルシクロペンタジエニル) (2', 7'-ジ-*t*-ブチルフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (2-エチルシクロペンタジエニル) (2', 7'-ジ-*t*-ブチルフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (ジエチルシクロペンタジエニル) (2, 7-ジ-*t*-ブチルフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (メチルシクロペンタジエニル) (オクタヒドフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (ジメチルシクロペンタジエニル) (オクタヒドロフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (エチルシクロペンタジエニル) (オクタヒドロフルオレニル) チタニウムジクロリド, ジメチルシリレン (ジエチルシクロペンタジエニル) (オクタヒドロフルオレニル) チタニウムジクロリドなどのシリレン基架橋共役五員環配位子を2個有する遷移金属化合物、

④ジメチルゲルミレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, ジメチルゲルミレン (シクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリド, メチルアルミレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, フェニルアミレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, フェニルホスフィレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, エチルボレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, フェニルアミレンビス (インデニル) チタニウムジクロリド, フェニルアミレン (シクロペンタジエニル) (フルオレニル) チタニウムジクロリドなどのゲルマニウム, アルミニウム, 硼素, リン又は窒素を含む炭化水素基で架橋され

た共役五員環配位子を2個有する遷移金属化合物、

⑤ペンタメチルシクロペンタジエニルーピス(フェニル)アミノチタニウムジクロリド, インデニルーピス(フェニル)アミノチタニウムジクロリド, ペンタメチルシクロペンタジエニルーピス(トリメチルシリル)アミノチタニウムジクロリド, ペンタメチルシクロペンタジエニルフェノキシチタニウムジクロリド, ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)フェニルアミノチタニウムジクロリド, ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)-t-アブチルアミノチタニウムジクロリド, ジメチルシリレン(テトラヒドロインデニル)デシルアミノチタニウムジクロリド, ジメチルシリレン(テトラヒドロインデニル)[ビス(トリメチルシリル)アミノ]チタニウムジクロリド, ジメチルゲルミレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)フェニルアミノチタニウムジクロリド, ペンタメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド, ペンタメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロリドなどの共役五員環配位子を1個有する遷移金属化合物、

⑥(1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-イソプロピリデン)ーピス(シクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-ジメチルシリレン)ーピス(シクロペンタジエニル)チタニウムジクロリド, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-イソプロピリデン)ーピス(シクロペンタジエニル)ジメチルチタニウム, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-イソプロピリデン)ーピス(シクロペンタジエニル)ジベニジルチタニウム, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-イソプロピリデン)ーピス(シクロペンタジエニル)ビス(トリメチルシリル)チタニウム, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-イソプロピリデン)ーピス(シクロペンタジエニル)ビス(トリメチルシリルメチル)チタニウム, (1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-エチレン)ーピス(インデニル)チタニウムジクロリド, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-エチレン)ーピス(インデニル)チタニウムジクロリド, (1, 1'-エチレン)(2, 2'-ジメチルシリレン)ーピス(インデニル)チタニウムジクロリド, (1, 1'-ジメチルシリレン)(2, 2'-シクロヘキシリデン)ーピス(インデニル)チタニウムジクロリド,

ムジクロリドなどの配位子同士が二重架橋された共役五員環配位子を2個有する遷移金属化合物、

⑦さらには、上記①～⑥に記載の化合物において、これらの化合物の塩素原子を臭素原子、ヨウ素原子、水素原子、メチル基、フェニル基などに置き換えたもの、また、上記遷移金属化合物の中心金属のチタニウムをジルコニウム、ハフニウム、ニオブ、モリブデン又はタンゲステンなどに置き換えたものを挙げることができる。

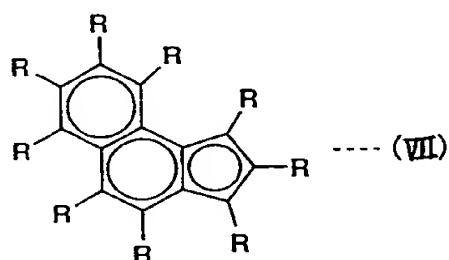
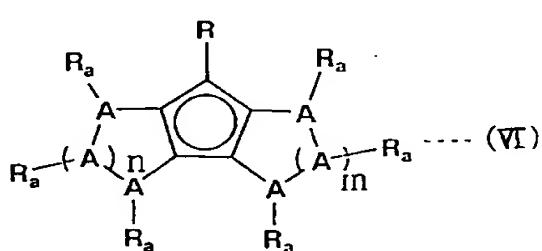
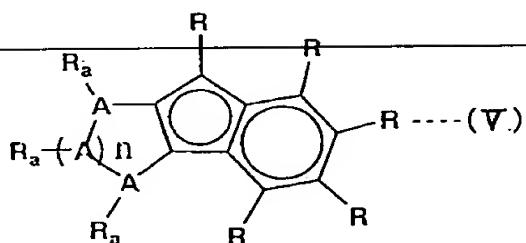
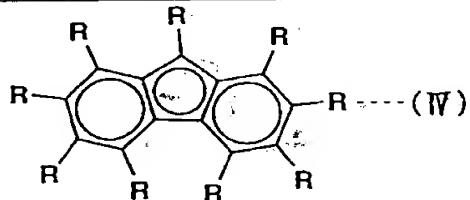
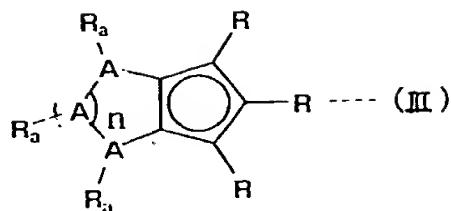
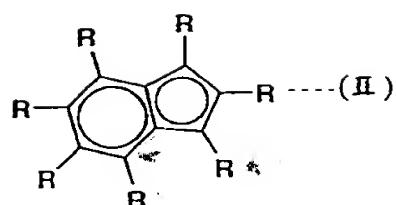
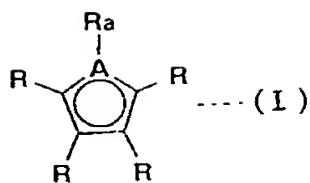
(II) 前記一般式(4)で表される遷移金属化合物の具体例として、以下の化合物を挙げることができる。

【0015】

中でも、上記一般式(4)中の $(C_5H_{5-e}R^{11})_e$ 基が、下記一般式(I)～(VII)で表せられる遷移金属化合物が好ましい。

【0016】

【化3】



【0017】

[式中, Aは13、14、15又は16族の元素を示し、Aは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。Rは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1

～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、カルボキシル基、炭素数3～30のアルキルシリル基、アルキルシリルアルキル基を示し、Rは、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよく、また、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。aは0、1又は2を示し、n及びmは、1以上の整数を示す。】

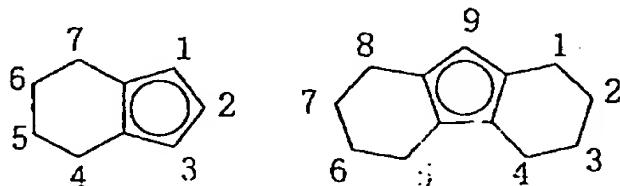
この($C_5H_{5-e}R^{11}_e$)基の具体例としては、例えば、以下のものが挙げられる。

【0018】

なお、インデニル誘導体及びフルオレニル誘導体について、以下に示す置換基の位置番号を用いている。

【0019】

【化4】



【0020】

シクロペンタジエニル基、メチルシクロペンタジエニル基、1,2-ジメチルシクロペンタジエニル基、1,3-ジメチルシクロペンタジエニル基、1,2,3-トリメチルシクロペンタジエニル基、1,3,4-トリメチルシクロペンタジエニル基、テトラメチルシクロペンタジエニル基、ペンタメチルシクロペンタジエニル基、エチルシクロペンタジエニル基、1,2-ジエチルシクロペンタジエニル基、1,3-ジエチルシクロペンタジエニル基、1,2,3-トリエチル

シクロペニタジエニル基、1, 3, 4-トリエチルシクロペニタジエニル基、テトラエチルシクロペニタジエニル基、ペニタエチルシクロペニタジエニル基、イソデニル基、1-メチルインデニル基、1, 2-ジメチルインデニル基、1, 3-ジメチルインデニル基、1, 2, 3-トリメチルインデニル基、2-メチルイソデニル基、1-エチルインデニル基、1-エチル-2-メチルインデニル基、1-エチル-3-メチルインデニル基、1-エチル-2, 3-ジメチルインデニル基、1, 2-ジエチルインデニル基、1, 3-ジエチルインデニル基、1, 2, 3-トリエチルインデニル基、2-エチルインデニル基、1-メチル-2-エチルインデニル基、1, 3-ジメチル-2-エチルインデニル基、4, 5, 6, 7-テトラヒドロイソデニル基、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロイドロインデニル基、1-エチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1-エチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1-エチル-2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 2-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 3-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 2, 3-トリエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1-メチル-2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 3-ジメチル-2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、フルオレニル基、9-メチルフルオレニル基、9-エチルフルオレニル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロフルオレニル基、9-メチル-1, 2, 3, 4-テトラヒドロフルオレニル基、9-エチル-1, 2, 3, 4-テトラヒドロフルオレニル基、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニル基、9-メチル、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニル基

ドロフルオレニル基、9-エチル、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニル基等が挙げられる。

【0021】

前記一般式(4)で表される遷移金属化合物の具体例を以下に示す。なお、以下の具体例におけるチタニウムの部分についてジルコニウムと置き換えたものについても同様に例示することができる。

シクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、シクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、シクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、シクロペンタジエニルチタニウムトリベンジル、メチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、メチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、メチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、メチルシクロペンタジエニルチタニウムトリベンジル、ジメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、ジメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、ジメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、ジメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリベンジル、トリメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、トリメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、トリメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、トリメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリベンジル、テトラメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、テトラメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、テトラメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、テトラメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリベンジル、ペンタメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリクロライド、ペンタメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメチル、ペンタメチルシクロペンタジエニルチタニウムトリメトキシド、インデニルチタニウムトリクロリド、インデニルチタニウムトリメチル、インデニルチタニウムトリメトキシド、インデニルチタニウムトリベンジル、1-メチルインデニルチタニウムトリクロリド、1-メチルインデニルチタニウムトリメチル、1-メチルインデニルチタニウムトリメトキシド、1-メチルインデニルチタニウムトリベンジル、2-メチルインデニルチタニウムトリクロリド、2-メチルインデニルチタニウムトリメチ

ル、2-メチルインデニルチタニウムトリメトキシド、1-メチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2-ジメチルインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2-ジメチルインデニルチタニウムトリメチル、1, 2-ジメチルインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2-ジメチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 3-ジメチルインデニルチタニウムトリクロリド、1, 3-ジメチルインデニルチタニウムトリメチル、1, 3-ジメチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリメチル、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2, 3-トリメチルインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-ヘプタメチルインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-ヘプタメチルインデニルチタニウムトリメチル、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-ヘプタメチルインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-ヘプタメチルインデニルチタニウムトリベンジル、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2-ジメチル、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウム

トリベンジル、1, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3-トリメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2, 3-トリメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 2, 3-トリメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2, 3-トリメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-エチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1-エチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1-エチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1-エチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-エチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1-エチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1-エチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1-エチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-エチル-2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1-エチル-2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1-エチル-2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1-エチル-2, 3-ジメチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル

ニルチタニウムトリベンジル、1, 2-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 2-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2-ジエチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2-ジエチル、3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 2-ジエチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2-ジエチル-3-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 3-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 3-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 3-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 3-ジエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 3-ジエチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 3-ジエチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 3-ジエチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 3-ジエチル-2-メチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1, 2, 3-トリエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、1, 2, 3-トリエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、1, 2, 3-トリエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、1, 2, 3-トリエチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリクロリド、2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメチル、2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリメトキシド、2-エチル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニルチタニウムトリベンジル、1-メチル-2-エチル-4, 5, 6, 7-テト

ロフルオレニルチタニウムトリメトキシド、9-メチル-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニルチタニウムトリクロリド、9-エチル-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニルチタニウムトリメチル、9-エチル-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニルチタニウムトリメチル、9-エチル-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニルチタニウムトリメトキシド、9-エチル-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-オクタヒドロフルオレニルチタニウムトリベンジル等、およびこれらの化合物におけるチタンをジルコニウムやハフニウムに置換したもの、あるいは他の族、またはランタノイド系列の遷移金属元素の類似化合物を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

(III) 一般式(5)に関する具体例を以下に示す。テトラメチルチタニウム、テトラベンジルチタニウム、テトラエチルチタニウム、テトラフェニルチタニウム、テトラメトキシチタニウム、テトラエトキシチタニウム、テトラフェノキシチタニウム、テトラ⁴(ジメチルアミノ)チタニウム、テトラ(ジエチルアミノ)チタニウム、テトラ²(ジフェニルアミノ)チタニウム、*Macromolecules* 1997, 30, 1562-1569や*Journal of Organometallic Chemistry* 514 (1996) 213-217等に記載されているBis-(phenoxo)titanium 化合物や*Macromolecules* 1996, 29, 5241-5243や*Organometallics* 1997, 16, 1491-1496等に記載されているDiamide titanium 化合物等、およびこれらの化合物におけるチタンをジルコニウムやハフニウムに置換したもの、あるいは他の族、またはランタノイド系列の遷移金属元素の類似化合物を挙げることができる。

(IV) 前記一般式(6)で表される遷移金属化合物において、 M^2 は周期律表8~10族の遷移金属を示すが、具体的には鉄、コバルト、ニッケル、パラジウム、白金などが挙げられるが、そのうちニッケル、パラジウムが好ましい。また、 L^1 、 L^2 はそれぞれ配位結合性の配位子を表わし、 X^1 、 Y^1 はそれぞれ共有結合性、又はイオン結合性の配位子を表している。ここで X^1 、 Y^1 については、前述したように、具体的には水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~20、好ましくは1~10の炭化水素基、炭素数1~20、好ましくは1~10のアルコキシ基、アミノ基、炭素数1~20、好ましくは1~12のリン含有炭化水素基(例えば、ジフェニルホスフィン基など)又は炭素数1~20、好ましくは1~1

2の珪素含有炭化水素基（例えば、トリメチルシリル基など）、炭素数1～20、好ましくは1～12の炭化水素基あるいはハロゲン含有硼素化合物（例えばB₄（C₆H₅）₄、BF₄）を示す。これらの中でハロゲン原子及び炭化水素基が好ましい。このX¹及びY¹はたがいに同一であっても異なっていてもよい。さらに、L¹、L²の具体例としては、トリフェニルホスфин；アセトニトリル；ベンゾニトリル；1, 2-ビスジフェニルホスフィノエタン；1, 3-ビスジフェニルホスフィノプロパン；1, 1'-ビスジフェニルホスフィノフェロセン；シクロオクタジエン；ピリジン；ビストリメチルシリルアミノビストリメチルシリルイミノホスホランなどを挙げることができる。

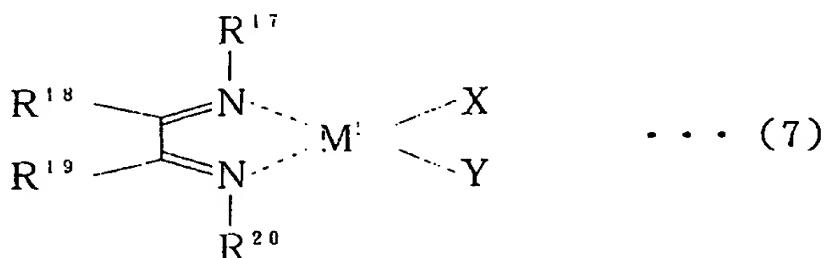
なお、上記L¹、L²、X¹およびY¹は、それぞれ互いに結合して環構造を形成してもよい。

【0022】

一方、周期律表第8～10族の遷移金属化合物は、ジイミン化合物を配位子とするものが好ましく、このようなものとしては、例えば一般式(7)

【0023】

【化5】



【0024】

(式中、R¹⁷およびR²⁰はそれぞれ独立に炭素数1～20の脂肪族炭化水素基または全炭素数7～20の環上に炭化水素基を有する芳香族基、R¹⁸およびR¹⁹はそれぞれ独立に水素原子または炭素数1～20の炭化水素基を示し、R¹⁸とR¹⁹はたがいに結合して環を形成してもよく、XおよびYはそれぞれ独立に水素

原子または炭素数1～20の炭化水素基、 M^2 は周期律表第8ないし10族の遷移金属を示す。)

で表される錯体化合物を挙げることができる。

【0025】

上記一般式(7)において、 R^{17} および R^{20} のうちの炭素数1～20の脂肪族炭化水素基としては、炭素数1～20の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基または炭素数3～20のシクロアルキル基など、具体的にはメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基などが挙げられる。なお、シクロアルキル基の環上には低級アルキル基などの適当な置換基が導入されていてもよい。また、全炭素数7～20の環上に炭化水素基を有する芳香族基としては、例えばフェニル基やナフチル基などの芳香族環上に、炭素数1～10の直鎖状、分岐状または環状の

アルキル基が1個以上導入された基などが挙げられる。この R^{17} および R^{20} としては、環上に炭化水素基を有する芳香族基が好ましく、特に2, 6-ジイソプロピルフェニル基が好適である。 R^{17} および R^{20} は、たがいに同一であってもよく、異なっていてもよい。

【0026】

また、 R^{18} および R^{19} のうちの炭素数1～20の炭化水素基としては、例えば炭素数1～20の直鎖状若しくは分岐状アルキル基、炭素数3～20のシクロアルキル基、炭素数6～20のアリール基、炭素数7～20のアラルキル基などが挙げられる。ここで、炭素数1～20の直鎖状若しくは分岐状アルキル基、炭素数3～20のシクロアルキル基としては、前記 R^{17} および R^{20} のうちの炭素数1～20の脂肪族炭化水素基の説明において例示したものと同じものを挙げることができる。また炭素数6～20のアリール基としては、例えばフェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、メチルナフチル基などが挙げられ、炭素数7～20のアラルキル基としては、例えばベンジル基やフェネチル基などが挙げられる。この R^{17} および R^{18} は、たがいに同一であってもよく、異なっていてもよい。

。また、たがいに結合して環を形成していてもよい。

【0027】

一方、XおよびYのうちの炭素数1～20の炭化水素基としては、上記R¹⁸およびR¹⁹における炭素数1～20の炭化水素基について、説明したとおりである。このXおよびYとしては、特にメチル基が好ましい。また、XとYは、たがいに同一であってもよく異なっていてもよい。

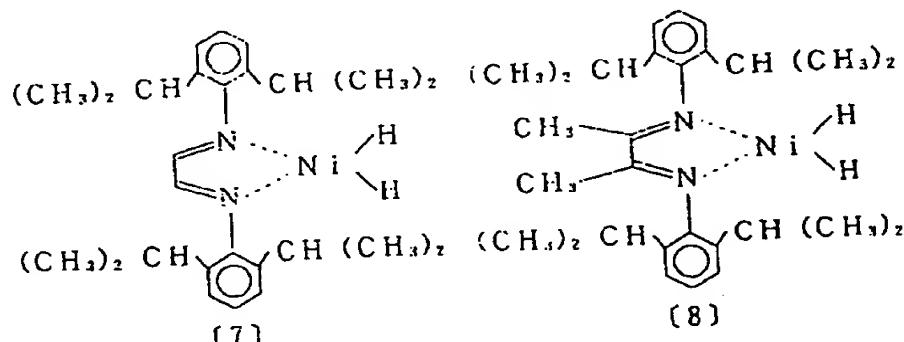
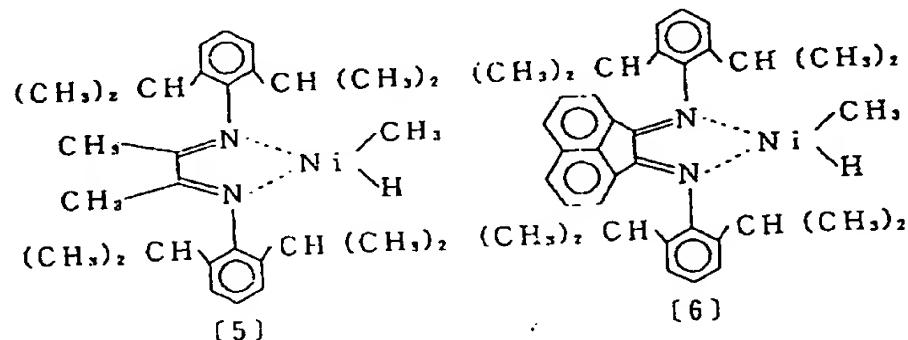
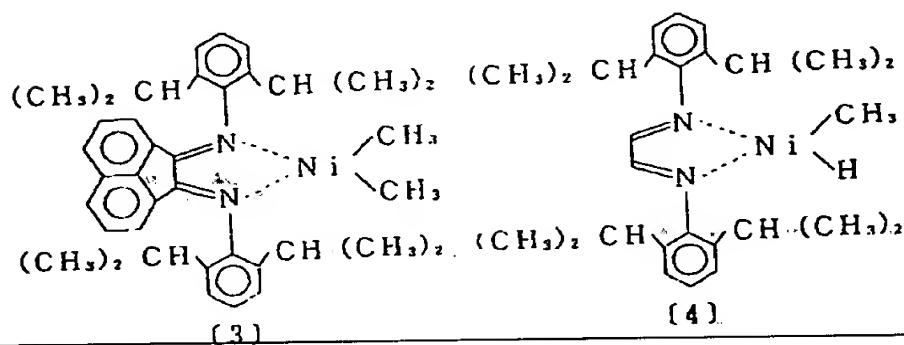
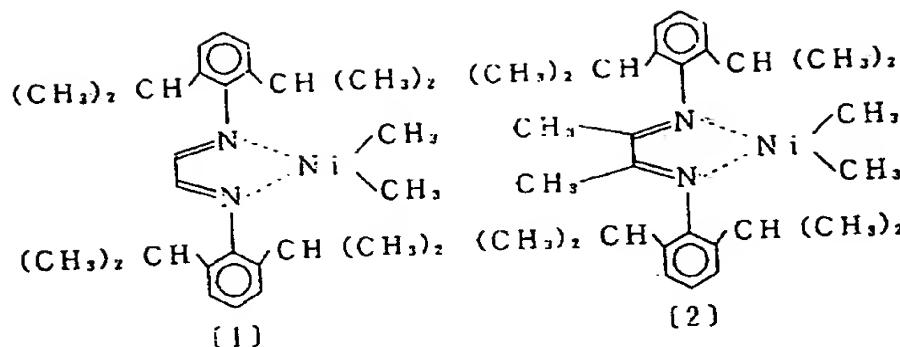
M²の周期律表第8ないし10族の遷移金属としては、例えば、ニッケル、パラジウム、白金、鉄、コバルト、ロジウム、ルテニウムなどが挙げられ、ニッケル、パラジウムが好ましい。

【0028】

前記一般式(7)で表される錯体化合物の例としては、下記の式〔1〕，〔2〕，〔3〕，〔4〕，〔5〕，〔6〕，〔7〕，〔8〕，〔9〕，〔10〕，〔11〕および〔12〕で表される化合物などを挙げることができる。

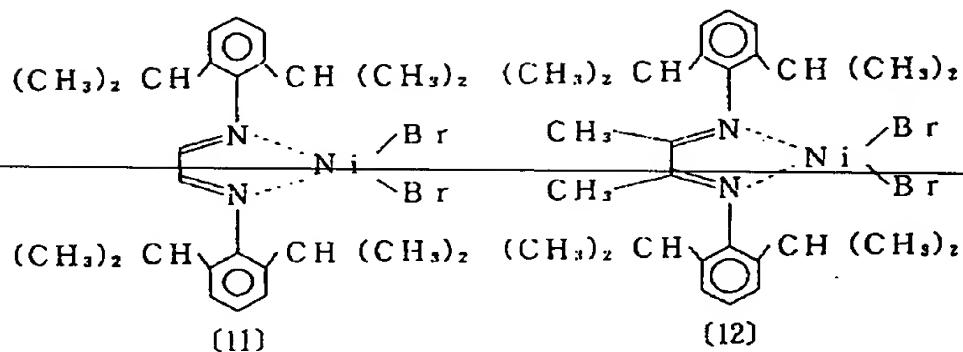
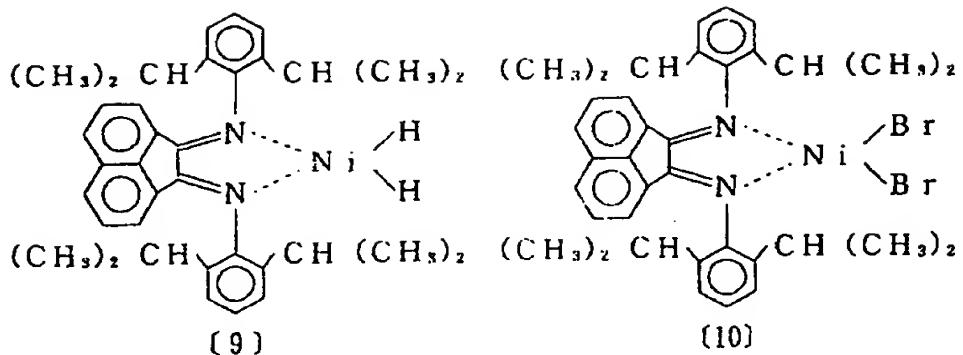
【0029】

【化6】



【0030】

【化7】



【0031】

この一般式(7)で表される遷移金属化合物の具体例としては、ジブロモビストリフェニルホスフィンニッケル、ジクロロビストリフェニルホスフィンニッケル、ジブロモジアセトニトリルニッケル、ジブロモジベンゾニトリルニッケル、ジブロモ(1,2-ビスジフェニルホスフィノエタン)ニッケル、ジブロモ(1,3-ビスジフェニルホスフィノプロパン)ニッケル、ジブロモ(1,1'-ジフェニルビスホスフィノフェロセン)ニッケル、ジメチルビスジフェニルホスフィンニッケル、ジメチル(1,2-ビスジフェニルホスフィノエタン)ニッケル、メチル(1,2-ビスジフェニルホスフィノエタン)ニッケルテトラフルオロボレート、(2-ジフェニルホスフィノ-1-フェニルエチレンオキシ)フェニ

ルピリジンニッケル, ジクロロビストリフェニルホスфинパラジウム, ジクロロジベンゾニトリルパラジウム, ジクロロジアセトニトリルパラジウム, ジクロロ(1, 2-ビスジフェニルホスフィノエタン)パラジウム, ビストリフェニルホスфинパラジウムビステトラフルオロボレート, ビス(2, 2'-ビピリジン)メチル鉄テトラフルオロボレートエーテラートなどを挙げることができる。

【0032】

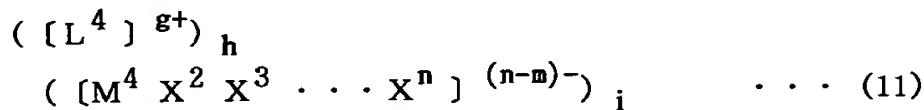
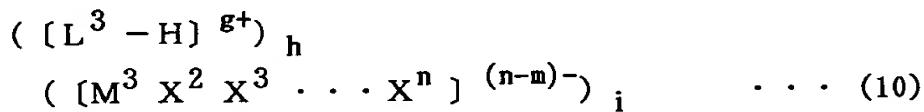
なかでも、メチル(1, 2-ビスジフェニルホスフィノエタン)ニッケルテトラフルオロボレートやビストリフェニルホスфинパラジウムビステトラフルオロボレート, ビス(2, 2'-ビピリジン)メチル鉄テトラフルオロボレートエーテラートのようなカチオン型錯体が好ましく用いられる。

本発明においては、前記錯体化合物を一種用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物

遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物としては、複数の基が金属に結合したアニオンとカチオンとからなる配位錯化合物又はルイス酸を挙げることができる。複数の基が金属に結合したアニオンとカチオンとからなる配位錯化合物としては様々なものがあるが、例えば下記一般式(10)又は(11)で表される化合物を好適に使用することができる。

【0033】



[式(10)又は(11)中、 L^4 は後述の M^5 , $R^{21}R^{22}M^6$ 又は R^{23}_3C であり、 L^3 はルイス塩基、 M^3 及び M^4 はそれぞれ周期律表の5族～15族から選ばれる金属、 M^5 は周期律表の1族及び8族～12族から選ばれる金属、 M^6 は周期律表の8族～10族から選ばれる金属、 $X^2 \sim X^n$ はそれぞれ水素原子、ジアルキルアミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、

置換アルキル基、有機メタロイド基又はハロゲン原子を示す。R²¹及びR²²はそれぞれシクロペンタジエニル基、置換シクロペンタジエニル基、インデニル基又はフルオレニル基、R²³はアルキル基を示す。mはM³、M⁴の原子価で1～7の整数、nは2～8の整数、gはL³ - H、L⁴のイオン価数で1～7の整数、hは1以上の整数、i = h × g / (n - m) である。】

M³及びM⁴の具体例としてはB、Al、Si、P、As、Sbなどの各原子、M⁴の具体例としてはAg、Cu、Na、Liなどの各原子、M⁵の具体例としてはFe、Co、Niなどの各原子が挙げられる。X²～Xⁿの具体例としては、例えば、ジアルキルアミノ基としてジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基など、アルコキシ基としてメトキシ基、エトキシ基、n-ブトキシ基など、アリールオキシ基としてフェノキシ基、2, 6-ジメチルフェノキシ基、ナフチルオキシ基など、炭素数1～20のアルキル基としてメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、n-オクチル基、2-エチルヘキシル基など、炭素数6～20のアリール基、アルキルアリール基若しくはアリールアルキル基としてフェニル基、p-トトリル基、ベンジル基、ペンタフルオロフェニル基、3, 5-ジ(トリフルオロメチル)フェニル基、4-ターシャリーブチルフェニル基、2, 6-ジメチルフェニル基、3, 5-ジメチルフェニル基、2, 4-ジメチルフェニル基、1, 2-ジメチルフェニル基など、ハロゲンとしてF、Cl、Br、I、有機メタロイド基として五メチルアンチモン基、トリメチルシリル基、トリメチルゲルミル基、ジフェニルアルシン基、ジシクロヘキシルアンチモン基、ジフェニル硼素基などが挙げられる。R²¹及びR²²のそれぞれで表される置換シクロペンタジエニル基の具体例としては、メチルシクロペンタジエニル基、ブチルシクロペンタジエニル基、ペンタメチルシクロペンタジエニル基などが挙げられる。

【0034】

本発明において、複数の基が金属に結合したアニオンとしては、具体的にはB(C₆F₅)₄⁻、B(C₆HF₄)₄⁻、B(C₆H₂F₃)₄⁻、B(C₆H₃F₂)₄⁻、B(C₆H₄F)₄⁻、B(C₆CF₃F₄)₄⁻、B(C₆H₅)₄⁻、PF₆⁻、P(C₆F₅)₆⁻、Al(C₆HF₄)₄⁻などが挙げられる。また金属

カチオンとしては、 Cp_2Fe^+ , $(MeCp)_2Fe^+$, $(tBuCp)_2Fe^+$, $(Me_2Cp)_2Fe^+$, $(Me_3Cp)_2Fe^+$, $(Me_4Cp)_2Fe^+$, $(Me_5Cp)_2Fe^+$, Ag^+ , Na^+ , Li^+ などが挙げられ、またその他カチオンとしては、ピリジニウム, 2, 4-ジニトロ-N, N-ジエチルアニリニウム, ジフェニルアンモニウム, p-ニトロアニリニウム, 2, 5-ジクロロアニリン, p-ニトロ-N, N-ジメチルアニリニウム, キノリニウム, N, N-ジメチルアニリニウム, N, N-ジエチルアニリニウムなどの窒素含有化合物、トリフェニルカルベニウム, トリ(4-メチルフェニル)カルベニウム, トリ(4-メトキシフェニル)カルベニウムなどのカルベニウム化合物、 $CH_3PH_3^+$, $C_2H_5PH_3^+$, $C_3H_7PH_3^+$, $(CH_3)_2PH_2^+$, $(C_2H_5)_2PH_2^+$, $(C_3H_7)_2PH_2^+$, $(CH_3)_3PH^+$, $(C_2H_5)_3PH^+$, $(C_3H_7)_3PH^+$, $(CF_3)_3PH^+$, $(CH_3)_4P^+$, $(C_2H_5)_4P^+$; $(C_3H_7)_4P^+$ 等のアルキルfosfoniumイオン, 及び $C_6H_5PH_3^+$, $(C_6H_5)_2PH_2^+$, $(C_6H_5)_3PH^+$, $(C_6H_5)_4P^+$, $(C_2H_5)_2(C_6H_5)PH^+$, $(CH_3)(C_6H_5)PH_2^+$, $(CH_3)_2(C_6H_5)PH^+$, $(C_2H_5)_2(C_6H_5)_2P^+$ などのアリールfosfoniumイオンなどが挙げられる。

【0035】

一般式(10)及び(11)の化合物の中で、具体的には、下記のものを特に好適に使用できる。一般式(10)の化合物としては、例えばテトラフェニル硼酸トリエチルアンモニウム, テトラフェニル硼酸トリ(n-ブチル)アンモニウム, テトラフェニル硼酸トリメチルアンモニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸トリエチルアンモニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸トリ(n-ブチル)アンモニウム, ヘキサフルオロ硫酸トリエチルアンモニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸ピリジニウム, テトラ(ペンタフルオロフェニル)硼酸ピロリニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸N, N-ジメチルアニリニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸メチルジフェニルアンモニウムなどが挙げられる。一方、一般式(11)の化合物としては、例えばテトラフェニル硼酸フェロセニウム, テトラキス(ペンタフルオロフェニル)硼酸メチルジフェニルアンモニウムなどが挙げられる。

ルオロフェニル) 硼酸ジメチルフェロセニウム, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸フェロセニウム, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸デカメチルフェロセニウム, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸アセチルフェロセニウム, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸ホルミルフェロセニウム, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸シアノフェロセニウム, テトラフェニル硼酸銀, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸銀, テトラフェニル硼酸トリチル, テトラキス(ペントフルオロフェニル) 硼酸トリチル, ヘキサフルオロ砒素酸銀, ヘキサフルオロアンチモン酸銀, テトラフルオロ硼酸銀などが挙げられる。

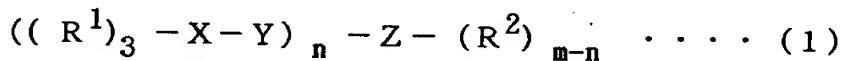
【0036】

また、ルイス酸として、例えば $B(C_6F_5)_3$, $B(C_6HF_4)_3$, $B(C_6H_2F_3)_3$, $B(C_6H_3F_2)_3$, $B(C_6H_4F)_3$, $B(C_6H_5)_3$, BF_3 , $B(C_6CF_3F_4)_3$, PF_5 , $P(C_6F_5)_5$, $Al(C_6HF_4)_3$ なども用いることができる。

(C) 成分

下記一般式(1)で表される化合物である。

【0037】



(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1~30 の脂肪族炭化水素基、炭素数 6~30 の芳香族炭化水素基、炭素数 1~30 のアルコキシ基、炭素数 6~30 のアリーロキシ基、炭素数 1~30 のチオアルコキシ基、炭素数 6~30 のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。X は、14 族の元素を示し、Y は、16 族の元素を示し、Z は、2 族~13 族の金属元素を示す。 R^2 は、炭化水素基を示す。m は、金属元素 Z の価数の整数を示し、n は、1~(m-1) の整数を示す。)

なかでも、次のものが好ましく用いられる。即ち、(1) X が炭素であり、Y が酸素であり、Z がアルミニウムであるもの、(2) 3 個の R^1 のうち、少なく

とも1つが炭素数6~30の芳香族炭化水素基であるもの、(3)3個のR¹のすべてが炭素数1以上の炭化水素基であるもの、(4)3個のR¹のすべてが炭素数6~30の芳香族炭化水素基、好ましくはフェニル基であるもの、(5)R²が炭素数2以上のアルキル基であるものである。

【0038】

具体的には、R¹がすべてフェニル基であり、Xが炭素、Yが酸素、Zがアルミニウムであり、n=1であり、R²がイソブチル基であるものが好ましく挙げられる。

(C) 成分としては、上記一般式で表される構造を持つものであれば、その製造方法は特に間わないが、①一般式 (R¹)₃-C-OR³ で表される化合物、又は①一般式 (R¹)₃-C-OR³、R⁴-CO-R⁵ もしくはR⁶-CO-OR⁷ で表される化合物から選ばれた少なくとも1種と、②一般式 Z.(R²)_m で表される化合物とを反応させることにより得られたものが好適に用いられる。(式中、R¹は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~30の脂肪族炭化水素基、炭素数6~30の芳香族炭化水素基、炭素数1~30のアルコキシ基、炭素数6~30のアリーロキシ基、炭素数1~30のチオアルコキシ基、炭素数6~30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれのR¹は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれのR¹は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。R³、R⁴、R⁵、R⁶及びR⁷は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~30の脂肪族炭化水素基、炭素数6~30の芳香族炭化水素基、炭素数1~30のアルコキシ基、炭素数6~30のアリーロキシ基、炭素数1~30のチオアルコキシ基、炭素数6~30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、R³、R⁴、R⁵、R⁶及びR⁷は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。Zは、2族~13族の金属元素を、mは、金属元素Zの価数の整数を示し、R²は、炭化水素基を示す。)

具体的には、アルコール類、エーテル類、アルデヒド類、ケトン類、カルボン酸類、カルボン酸エステル類から選ばれた少なくとも1種とアルミニウム化合物との反応生成物である。好ましくはアルコール類とアルミニウム化合物との反応

生成物である。この場合においても、(1) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のうち、少なくとも1つが炭素数6~30の芳香族炭化水素基であるもの、(2) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のすべてが炭素数1以上の炭化水素基であるもの、(3) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のすべてが炭素数6~30の芳香族炭化水素基、好ましくはフェニル基であるもの、(4) R^2 が炭素数2以上のアルキル基であるものが好ましく用いられ、具体的には、 R^1 がすべてフェニル基であり、 R^2 がイソブチル基であるものが好ましく挙げられる。即ち、トリフェニルメチルアルコールとトリイソブチルアルミニウムとの反応生成物を最も好ましくあげることができる。

【0039】

①の化合物と②の化合物の反応条件としては特に制限はないが、次のような条件が好ましく選ばれる。即ち、配合比については、モル比で、①の化合物:②の化合物 = 1 : 0.1~1.0、好ましくは 1 : 0.5~2、さらに好ましくは 1 : 0.8~1.2 である。反応温度は -80℃~300℃、好ましくは -10℃~50℃ であり、反応時間は 0.1 分~50 時間、好ましくは 0.1 分~3 時間である。また反応時に使用する溶媒も制限はないが、重合時に使用される溶媒が好ましく用いられる。

【0040】

さらには、(C) 成分として、上記一般式で示される化合物ではなく、次に示す (C1) の化合物と (C2) の化合物を直接触媒合成の場、又は重合の場に投入してもよい。即ち、この場合は、触媒成分としては、前記 (A) 遷移金属化合物、(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物、(C1)、(C2)、及び必要に応じて用いられる (D) アルキル化剤ということになる。

【0041】

(C1) とは、一般式 $(R^1)_3 - C - OR^3$ で表される化合物、又は一般式 $(R^1)_3 - C - OR^3$ 、 $R^4 - CO - R^5$ もしくは $R^6 - CO - OR^7$ で表される化合物から選ばれた少なくとも1種であり、(C2) とは、一般式 $Z (R^2)_m$ で表される化合物である。

(式中、 R^1 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、それぞれの R^1 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。またそれぞれの R^1 は、必要に応じて結合し、環構造を形成してもよい。 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～30の脂肪族炭化水素基、炭素数6～30の芳香族炭化水素基、炭素数1～30のアルコキシ基、炭素数6～30のアリーロキシ基、炭素数1～30のチオアルコキシ基、炭素数6～30のチオアリーロキシ基、アミノ基、アミド基、又はカルボキシル基を示し、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 は、それぞれ相互に同一であっても異なっていてもよい。 Z は、2族～13族の金属元素を、 m は、金属元素 Z の価数の整数を示し、 R^2 は、炭化水素基を示す。)

具体的には、(C1) としては、アルコール類、エーテル類、アルデヒド類、ケトン類、カルボン酸類、カルボン酸エステル類から選ばれた少なくとも1種、好ましくはアルコール類が挙げられ、(C2) としては、アルミニウム化合物が挙げられる。この場合においても、(1) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のうち、少なくとも1つが炭素数6～30の芳香族炭化水素基であるもの、(2) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のすべてが炭素数1以上の炭化水素基であるもの、(3) $(R^1)_3$ における3個の R^1 のすべてが炭素数6～30の芳香族炭化水素基、好ましくはフェニル基であるもの、(4) R^2 が炭素数2以上のアルキル基であるものが好ましく用いられ、より具体的には、(C1) としては、トリフェニルメチルアルコールが挙げられ、(C2) としては、トリイソブチルアルミニウムとを最も好ましく挙げることができる。

(D) アルキル化剤

本発明のオレフィン系重合体製造用触媒においては、必要に応じて、アルキル化剤が用いられる。アルキル化剤としては様々なものがあるが、例えば、一般式(12)



〔式中、R²⁴及びR²⁵は、それぞれ炭素数1～8、好ましくは1～4のアルキル基を示し、Xは水素原子あるいはハロゲン原子を示す。また、mは0<m≤3、好ましくは2あるいは3、最も好ましくは3であり、nは0≤n<3、好ましくは0あるいは1である。〕

で表わされるアルキル基含有アルミニウム化合物や一般式(13)



〔式中、R²⁴は前記と同じである。〕

で表わされるアルキル基含有マグネシウム化合物、さらには一般式(14)



式中、R²⁴は前記と同じである。〕

で表わされるアルキル基含有亜鉛化合物等が挙げられる。

【0042】

これらのアルキル基含有化合物のうち、アルキル基含有アルミニウム化合物、とりわけトリアルキルアルミニウムやジアルキルアルミニウム化合物が好ましい。具体的にはトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリn-プロピルアルミニウム、トリイソプロピルアルミニウム、トリn-ブチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリt-ブチルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム、ジメチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムクロリド、ジn-プロピルアルミニウムクロリド、ジイソプロピルアルミニウムクロリド、ジn-ブチルアルミニウムクロリド、ジイソブチルアルミニウムクロリド、ジt-ブチルアルミニウムクロリド等のジアルキルアルミニウムハライド、ジメチルアルミニウムメトキサイド、ジメチルアルミニウムエトキサイド等のジアルキルアルミニウムアルコキサイド、ジメチルアルミニウムハイドライド、ジエチルアルミニウムハイドライド、ジイソブチルアルミニウムハイドライド等のジアルキルアルミニウムハイドライド等があげられる。さらには、ジメチルマグネシウム、ジエチルマグネシウム、ジn-プロピルマグネシウム、ジイソプロピルマグネシウム等のジアルキルマグネシウムやジメチル亜鉛、ジエチル亜鉛、ジn-プロピルエチル亜鉛、ジイソプロピル亜鉛等のジアルキル亜鉛をあげることができる。

2. 触媒の調製方法

(1) 各成分の接触順序

本発明においては、各成分の接触順序に特に制限はなく、以下のような順序で接触させることができる。

(i) (A) 成分、(B) 成分及び(C) 成分を用いる場合は、例えば、① (A) 成分と (B) 成分を接触させ、それに (C) 成分を接触させる方法や、② (A) 成分と (C) 成分を接触させ、それに (B) 成分を接触させる方法や、③ (B) 成分と (C) 成分を接触させ、それに (A) 成分を接触させる方法、さらには、④ 3成分を同時に接触させる方法が挙げられる。

【0043】

さらに、所望により (D) 成分を用いる場合においても、該 (D) 成分の接触順序は問わない。すなわち、(A) 成分に (D) 成分を接触させてから用いてもよく、(B) 成分に (D) 成分を接触させてから用いてもよく、また (C) 成分に (D) 成分を接触させてから用いてもよい。さらには、(A)、(B)、(D) 成分を予め接触させておき、その後、(C) 成分を接触させる方法でもよい。

(ii) (A) 成分、(B) 成分、(C1) 成分、及び(C2) 成分を用いる場合も、上記 (i) の場合と同様に各成分を接触させる順序は問わないが、(C1) 成分と (C2) 成分については、他の成分を接触させる前に予め接触させておくのが好適である。さらに、所望により (D) 成分を用いる場合においても、上記 (i) の場合と同様と同様である。

(2) 各成分の割合

① (A) 成分と (B) 成分のモル比は、(B) 成分として、遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物を用いる場合、通常 (A) 成分 1 モルに対し、(B) 成分が、有機アルミニウム化合物の場合は、アルミニウム原子のモル比で 1~10,000、好ましくは、10~1,000 の範囲で選ばれる。

【0044】

② (C) 成分は、(A) 成分 1 モルに対し、(C) 成分が、アルミニウム化合物の場合は、アルミニウム原子のモル比で 0.5~1,000、好ましくは、1~100 の範囲で選ばれる。(D) 成分の配合量については、(A) 成分 1 モルに対

し、(D) 成分が、アルミニウム化合物の場合は、アルミニウム原子のモル比で 0.5~1,000、好ましくは、1~100 の範囲で選ばれる。

【0045】

③ (C) 成分を用いず、(C1) 成分及び (C2) 成分を用いる場合、モル比で、(C1) 成分 : (C2) 成分 = 1 : 0.1~10、好ましくは 1 : 0.5~2、さらに好ましくは 1 : 0.8~1.2 である。(C2) 成分は、(A) 成分 1 モルに対し、(C2) 成分が、アルミニウム化合物の場合は、アルミニウム原子のモル比で 0.5~1,000、好ましくは、1~100 の範囲で選ばれる。(D) 成分の配合量については、上記②と同様である。

(3) 各成分の接触条件

触媒成分の接触については、窒素等の不活性気体中、重合温度以下で行なうことができるが、-30~200℃の範囲で行なってもよい。

(4) また、本発明においては、触媒の各成分、特に (B) 成分を適当な担体に担持させて用いてもよい。担体の種類については、特に制限はなく、無機酸化物等の無機担体が好ましく用いられる。無機酸化物としては、具体的には、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 TiO_2 、 Fe_2O_3 、 B_2O_3 、 CaO 、 ZnO 、 BaO 、 ThO_2 、シリカアルミナ、ゼオライト、フェライト、グラスファイバー等が挙げられる。これらの中では、特に、 SiO_2 や Al_2O_3 が好ましく用いられる。なお、これらの無機酸化物担体は少量の炭酸塩、硝酸塩、硫酸塩等を含有してもよい。担体の性状には特に制限はないが、平均粒径が通常 1~300 μm、好ましくは 10~200 μm、より好ましくは 20~100 μm である。

II. オレフィン系重合体の製造方法

1. 重合に供されるモノマー

本発明のオレフィン系重合体の製造方法は、前記のオレフィン類の重合用触媒を用いてオレフィン類の単独重合、オレフィン類と他のオレフィン類との共重合（すなわち、異種のオレフィン類相互の共重合）を好適に行なうことができる。

【0046】

オレフィンとしては特に制限はないが、炭素数 2~20 の α-オレフィンが好ましい。なかでもエチレン、プロピレンが好ましい。

α -オレフィンとしては、例えばエチレン、プロピレン、1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、4-メチル-1-ブテン、4-フェニル-1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、3, 3-ジメチル-1-ペンテン、3, 4-ジメチル-1-ペンテン、4, 4-ジメチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ヘキセン、5-メチル-1-ヘキセン、6-フェニル-1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセシ、1-ドデセシ、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセン、ビニルシクロヘキサン等の α -オレフィン類、ヘキサフルオロプロパン、テトラフルオロエチレン、2-フルオロプロパン、フルオロエチレン、1, 1-ジフルオロエチレン、3-フルオロプロパン、トリフルオロエチレン、3, 4-ジクロロ-1-ブテン等のハロゲン置換 α -オレフィン、シクロペンテン、シクロヘキセン、ノルボルネン、5-メチルノルボルネン、5-エチルノルボルネン、5-ブロピルノルボルネン、5, 6-ジメチルノルボルネン、5-ベンジルノルボルネン等の環状オレフィン等が挙げられる。

【0047】

本発明においては、上記オレフィン類は一種用いてもよいし、二種以上を任意に組み合わせて用いてもよい。

2. 重合条件

本発明においては、前記重合用触媒を用いて予備重合を行うことができる。予備重合前記触媒に、例えば、少量のオレフィン類を接触させることにより行うことができるが、その方法には特に制限はなく、公知の方法で行うことができる。予備重合に用いるオレフィン類については特に制限はなく、前記したものを用いることができる。予備重合温度は、通常-20~200℃、好ましくは-1℃~130℃である。予備重合において、溶媒としては、不活性炭化水素、脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素、モノマーなどを用いることができる。

【0048】

また、オレフィン類を重合させる方法については特に制限はなく、スラリー重合法、溶液重合法、気相重合法、塊状重合法、懸濁重合法など、任意の重合法を採用することができる。この場合、触媒の各成分とモノマーとの接触順序について

ても制限はない。即ち、前記のように触媒の各成分を予め混合して触媒を調製したのち、そこへモノマーを投入する方法でもよい。或いは、触媒の各成分を予め混合して触媒を調製しておくのではなく、触媒の各成分とモノマーを全く任意の順序で重合の場に投入する方法でもよい。好ましい形態としては、前記(C)成分、又は(C1)成分並びに(C2)成分以外の成分、即ち、(A)成分、(B)成分、(D)成分を予め混合しておき、一方、モノマーと前記(C)成分、又はモノマーと(C1)成分並びに(C2)成分とを別に混合しておき、かかる後に、これら両者を重合直前に混合することにより、重合を行なわせる方法が挙げられる。

【0049】

重合溶媒を用いる場合には、その溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、シクロヘキサン、塩化メチレン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等の炭化水素類やハロゲン化炭化水素類などが挙げられる。これらは一種用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また、重合に用いるモノマーもその種類によっては使用することができる。

【0050】

また、重合反応における触媒の使用量は、溶媒1リットル当たり、(A)成分が、通常0.1~100マイクロモル、好ましくは0.5~25マイクロモルの範囲になるように選ぶのが重合活性および反応器効率の面から有利である。

重合条件については、圧力は、通常、常圧~2000kg/cm²の範囲が選択される。また、反応温度は、通常、-50~250℃の範囲である。重合体の分子量の調節方法としては、各触媒成分の種類、使用量、重合温度の選択および水素の導入などが挙げられる。

【0051】

【実施例】

次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら制限されるものではない。

【実施例1】

(1) トリフェニルメタノール455ミリグラム(1.75mmol)のトルエン溶液に2Mのトリイソブチルアルミニウム0.875ミリリットルを-78℃で添加し、室温にて24時間攪拌した。このとき得られた(C)成分の濃度は0.1mol/lであった。

(2) 触媒投入管付きの1.6リットル容積のオートクレーブにトルエン360ミリリットル、1-オクテン40ミリリットル、トリイソブチルアルミニウムの1.0Mトルエン溶液1.0ミリリットル、テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートN、N-ジメチルアニリニウム10mmol/1トルエン溶液0.1ミリリットルおよび上記(1)で得られた(C)成分5ミリリットルを順次投入し、70℃に昇温した。次いでエチレンを8kg/cm²Gで導入した。次いで触媒投入管からトルエン20ミリリットルに溶解した1.0マイクロモルの(*t*-ブチルアミド)ジメチル(テトラメチル*n*⁵-シクロペンタジエニル)シランチタンジクロリドを投入した。エチレンが圧力8kg/cm²Gを保てるよう連続的に供給しながら、60分重合を行なった。その後、メタノールの添加により重合を停止した。重合体は大量のメタノールを加えてろ過分離し、減圧下60℃で4時間乾燥した。その結果46.1gのエチレン/1-オクテン共重合体が得られた。GPCで測定したところ、重量平均分子量はエチレン換算で127万、分子量分布は2.46であった。¹H-NMRで測定したところ、1-オクテン含量は18.4モルパーセントであった。

〔比較例1〕

実施例1の(2)において実施例1(1)の(C)成分を投入しなかったこと以外は実施例1と同様に行った。その結果35.3gのエチレン/1-オクテン共重合体が得られた。GPCで測定したところ、重量平均分子量はエチレン換算で117万、分子量分布は2.38であった。¹H-NMRで測定したところ、1-オクテン含量は16.7モルパーセントであった。

〔実施例2〕

触媒投入管付きの1.6リットル容積のオートクレーブにトルエン400ミリリットルトリイソブチルアルミニウムの1.0Mトルエン溶液1.0ミリリットル、トリス(ペンタフルオロフェニル)ボラン10mmol/1トルエン溶液0

1ミリリットルおよび上記実施例1の(1)で得られた(C)成分5ミリリットルを順次投入し、70℃に昇温した。次いでエチレンを8kg/cm²Gで導入した。次いで触媒投入管からトルエン20ミリリットルに溶解した1.0マイクロモルの(t-ブチルアミド)ジメチル(テトラメチルη⁵-シクロペンタジエニル)シランチタンジメチルを投入した。エチレンが圧力8kg/cm²Gを保てるように連続的に供給しながら、60分重合を行なった。その後、メタノールの添加により重合を停止した。重合体は大量のメタノールを加えてろ過分離し、減圧下60℃で4時間乾燥した。その結果16.2gのエチレン重合体が得られた。GPCで測定したところ、重量平均分子量はエチレン換算で114万、分子量分布は1.98であった。

【比較例2】

実施例2において実施例1(1)の(C)成分を投入しなかったこと以外は実施例2と同様に行った。その結果10.5gのエチレン重合体が得られた。GPCで測定したところ、重量平均分子量はエチレン換算で109万、分子量分布は2.02であった。

【0052】

【発明の効果】

本発明のオレフィン類の重合用触媒を用いることにより、オレフィン系重合体を効率よく、安価に製造することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 オレフィン系重合体を効率よく、安価に製造しうるオレフィン類の重合用触媒、重合体の製造方法を提供する。

【解決手段】 (A) 遷移金属化合物、(B) 遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成しうる化合物、(C) 特定の金属化合物、好ましくは特定の有機アルミ化合物、及び必要に応じて用いられる (D) アルキル化剤からなるスチレン類の重合用触媒。オレフィン系重合体の製造方法。

【選択図】 なし

出願人履歴情報

識別番号 [000183657]

1. 変更年月日 1995年 5月 1日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都港区芝五丁目6番1号

氏 名 出光石油化学株式会社

THIS PAGE BLANK (USTRD)